

**Messung der ^{238}U (n,2nf) – Reaktionszeit bei
einer Neutronenenergie von 14,3 MeV**

INAUGURAL-DISSERTATION

zur

Erlangung der Würde eines Doktors der Philosophie

vorgelegt der

Philosophisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der Universität Basel

von

ULRICH BERNHARD NOELPP

aus Basel

1973

aku-Fotodruck

Basel

1975

**Messung der ^{238}U (n,2nf) – Reaktionszeit bei
einer Neutronenenergie von 14,3 MeV**

INAUGURAL-DISSERTATION

zur

Erlangung der Würde eines Doktors der Philosophie

vorgelegt der

Philosophisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der Universität Basel

von

ULRICH BERNHARD NOELPP

aus Basel

aku-Fotodruck

Basel

1975

Genehmigt von der Philosophisch-Naturwissenschaftlichen
Fakultät auf Antrag der Herren Professoren
Dr. R. Wagner und Dr. E. Baumgartner

Basel, den 13. Februar 1973

Prof. Dr. M. Eichler
Dekan



A B S T R A C T

The angular distribution of fission-fragments emitted from a UO_2 -single-crystal bombarded with 14,3-MeV-neutrons has been measured with glass-plates used as fission-track-detectors. An analysis of the blocking-"dips" produced in the vicinity of two $\langle 111 \rangle$ -axes gives a $^{238}\text{U}(n,2nf)$ -reaction-time of $(6,5 + 2,5) \cdot 10^{-16}$ s. Effects of the prefission-neutrons are discussed.

Inhaltsverzeichnis

1.	Einleitung	4
1.1	Allgemeine Betrachtungen	4
1.2	Inhalt und Gliederung	4
2.	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Spaltung von ^{238}U mit schnellen Neutronen	5
2.2	Der Schatteneffekt	11
2.3	Kristallstruktur von UO_2	16
3.	Experimentelle Methoden und Hilfsmittel	18
3.1	Die Aufnahme von Protonogrammen	18
3.2	Vorexperimente	20
3.3	Vorbereitung des Kristalls	23
3.4	Bestrahlung	23
3.5	Der Nachweis der Spaltfragmente in Glas	25
4.	Messung und Auswertung	26
4.1	Bestimmung von Spurendichten	26
4.2	Resultate der Auszählungen	28
4.3	Bestimmung der Reaktionszeit von $^{238}\text{U}(n,2nf)$	29
4.4	Einfluss von Neutronen, die vor der Spaltung emittiert werden	32
4.5	Diskussion weiterer Terme	34
4.6	Abschätzung der oberen Fehlerschranke	35
5.	Diskussion	36
	Literaturverzeichnis	38

1. Einleitung

1.1 Allgemeine Betrachtungen

Die Kenntnis der Reaktionszeit hilft in vielen Fällen, Art und Mechanismus einer Kernreaktion zu verstehen. Der 1964 entdeckte Blocking-Effekt [1-3], zunächst für Oberflächenuntersuchungen und Demonstrationen verwendet, erschloss dem Experimentator dank einer besseren Deutung der Vorgänge beim Durchgang geladener Teilchen durch Festkörper und einer sich ständig entwickelnden experimentellen Technik das Gebiet der Lebensdauern um 10^{-15} bis 10^{-18} s.

Diese Methode, eigentlich eine Flug-Zeit-Technik mit Flugwegen um 10^{-9} cm, ist auf Zwischenkernsysteme beschränkt, die durch Emission geladener Teilchen zerfallen. So wurden bis jetzt Lebensdauern von Zwischenkernen bei inelastischer Protonen-Streuung [4-6], (p, α)-Reaktionen [7] und bei der Kernspaltung [8-13] untersucht.

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Spaltung von ^{238}U durch 14-MeV-Neutronen.

1.2 Inhalt und Gliederung

Spaltfragment-Winkelverteilungen werden in der Nähe von $\langle 111 \rangle$ -Achsen eines mit 14,3-MeV-Neutronen beschossenen UO_2 -Einkristalls mittels Glasplatten aufgenommen, die als Fragment-Spuren-Detektoren verwendet wurden. Nach der Theorie von Lindhard [24] wird aus der Differenz der Schattentiefen die $^{238}\text{U}(n,2nf)$ -Reaktionszeit ermittelt. Störungen durch die Prefission-Neutronen werden berücksichtigt. Im folgenden Kapitel werden Grundlagen zur Beschreibung der Spaltung einerseits, des Blockingeffekts und des Kristalls andererseits zusammengestellt. Experimentelle Hilfsmittel und Methoden werden im 3. Kapitel, die Resultate und ihre Analyse im 4. Kapitel beschrieben. Abschliessend diskutieren wir im 5. Kapitel unsere Schlussfolgerungen und vergleichen die Resultate mit experimentellen und theoretischen Ergebnissen anderer Autoren.

2. Theoretische Grundlagen

2.1 Spaltung von ^{238}U mit schnellen Neutronen

Der Wirkungsquerschnitt einer Zwischenkern-Reaktion

$$X(a, b_i)Y$$

kann als

$$2.1.1 \quad \sigma(a, b_i) = \sigma_c(a) \cdot P_c(b_i)$$

geschrieben werden. Hierbei stellt $\sigma_c(a)$ den Wirkungsquerschnitt für die Bildung des Zwischenkerns (Compound-System) aus dem Targetkern X und dem einfallenden Partikel a dar, $P_c(b_i)$ die Wahrscheinlichkeit, dass der Zwischenkern über den Kanal b_i zerfällt.

$\sigma_c(a)$ kann bei 14 MeV durch

$$2.1.2 \quad \sigma_c(a) \approx \sigma_{\text{tot}} - \sigma_{\text{el}}$$

angenähert werden, wobei σ_{tot} den totalen, σ_{el} den elastischen Wirkungsquerschnitt darstellen.

Bezeichnet man mit Γ_{b_i} die Breite des i-ten Ausgangskanals b_i , dann kann man die Zerfallswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit durch

$$2.1.3 \quad \lambda_t(b_i) = \Gamma_{b_i} / \hbar$$

ausdrücken. Im Allgemeinen stehen n Zerfallskanäle $b_1 \dots b_n$ zur Verfügung, mit Γ bezeichnen wir die totale Breite.

Es gilt also

$$2.1.4 \quad P_c(b_i) = \Gamma_{b_i} / \Gamma$$

Fassen wir 2.1.1 und 2.1.4 zusammen, so gilt

$$2.1.5 \quad \frac{\sigma(a, b_i)}{\sigma_c(a)} = P_c(b_i) = \frac{\Gamma_{b_i}}{\Gamma}$$

Wird ein ^{238}U -Kern mit schnellen Neutronen beschossen, so bildet sich der Zwischenkern $^{239}\text{U}^*$ mit der Anregungsenergie

$$2.1.6 \quad E_1^* = E_n + B_1$$

wobei E_n die Energie des einfallenden Neutrons, B_1 die Bindungsenergie des letzten Neutrons in ^{239}U darstellen ($B_1 = 4,7 \text{ MeV}$ [16]). Der Zwischenkern $^{239}\text{U}^*$ kann durch drei

Kanäle zerfallen:

- Uebergang in den Grundzustand ^{239}U durch Aussenden von γ -Quanten,
- Spaltung in zwei Fragmente,
- Emission eines Neutrons und Uebergang in einen Zustand des Kerns $^{238}\text{U}^*$ mit einer mittleren Anregungsenergie E_2^* von

$$2.1.7 \quad E_2^* = E_1^* - B_1 - 2 \cdot T(E_n) = E_n - 2 \cdot T(E_n)$$

$T(E_n)$ = Kerntemperatur, vgl. [14,15] ,

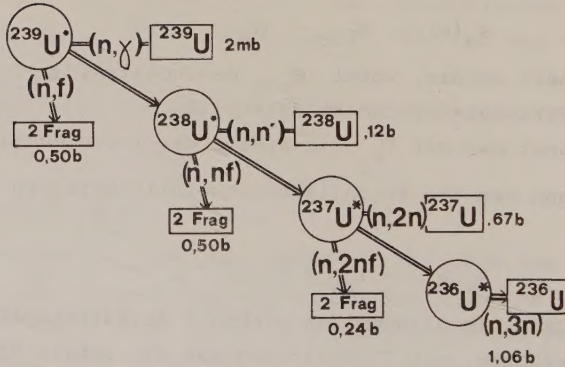


Fig. 1 : Zerfallsmöglichkeiten des Compoundkerns $^{239}\text{U}^*$
 ($E_n = 14,3 \text{ MeV}$), Wirkungsquerschnitte aus [29],
 zum Teil extrapolierte Werte

Auch der Zwischenkern $^{238}\text{U}^*$ hat bei genügend hoher Anregungsenergie E_2^* verschiedene Zerfallsmöglichkeiten, insbesondere

- Spaltung in zwei Fragmente,
- Emission eines Neutrons und Uebergang in einen Zustand des Kerns $^{237}\text{U}^*$ mit einer mittleren Anregungsenergie E_3^* von

$$2.1.8 \quad E_3^* = E_2^* - B_2 - 2 \cdot T(E_n) \cdot \sqrt{1 - B_2/E_2^*} \quad [15]$$

$$(B_2 = 6,0 \text{ MeV [16]}).$$

Liegt E_3^* genügend hoch, so besteht wiederum die Möglichkeit zur Spaltung in zwei Fragmente, oder zur Aussendung eines Neutrons und damit Uebergang zu $^{236}\text{U}^*$.

Diese Reaktionen sind in den Figuren 1 und 2 schematisch für $E_n = 14,3 \text{ MeV}$ aufgetragen.

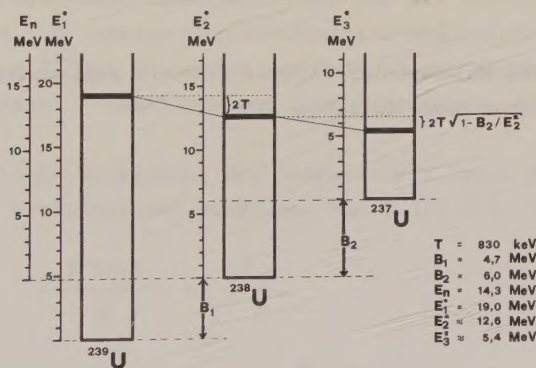


Fig. 2 : Energetische Verhältnisse bei der Wechselwirkung von 14,3 - MeV - Neutronen mit ^{238}U

Tabelle 1 : Wirkungsquerschnitte von ^{238}U für 14,3-MeV-Neutronen
(aus [29] extrapoliert)

Zwischen- kern	$\sigma(n, \text{xf})$	σ_n	$p_i = \sigma_f / \sigma_{\text{ftot}}$	σ_n / σ_f	Γ_n / Γ_f
$^{239}\text{U}^*$	$\sigma(n, f) = 0,5 \text{ b}$	$2,50 \text{ b}$	$0,40$	$5,0$	$5,0$
$^{238}\text{U}^*$	$\sigma(n, \text{nf}) = 0,5 \text{ b}$	$1,97 \text{ b}$	$0,40$	$3,95$	$4,0$
$^{237}\text{U}^*$	$\sigma(n, 2\text{nf}) = 0,24 \text{ b}$	$1,06 \text{ b}$	$0,19$	$4,4$	$3,0$

Dabei bedeuten

- $\sigma_{\text{ftot}} = 1,24 \text{ b} = \sigma(n, f) + \sigma(n, \text{nf}) + \sigma(n, 2\text{nf})$
den totalen Spaltquerschnitt,
- σ_n den Wirkungsquerschnitt für die Emission eines Neutrons.

Die letzte Kolonne der Tabelle enthält semiempirische Breiten-
verhältnisse nach Huizenga [17].

Die Wirkungsquerschnitte von ^{238}U für 14,3-MeV-Neutronen sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

Die Aufteilung auf die verschiedenen Spaltkanäle geschieht nach Formel 2.1.5 (S. 5) mit

$$2.1.9 \quad \frac{\Gamma_{n,f}}{\Gamma_{\text{ftot}}} = \frac{\sigma(n,f)}{\sigma_{\text{ftot}}} \quad \text{etc.}$$

Andererseits kann man nun die Aufteilung auch aus den theoretisch errechneten Verhältnissen Neutronenbreite zu Spaltbreite

Γ_n / Γ_f [17] bestimmen. So erhält man für die Wahrscheinlichkeit der Reaktion $^{238}\text{U}(n,2nf)$

$$2.1.10 \quad P(n,2nf) = \left(\frac{\Gamma_n}{\Gamma}\right)^{239} \cdot \left(\frac{\Gamma_n}{\Gamma}\right)^{238} \cdot \left(\frac{\Gamma_f}{\Gamma}\right)^{237}.$$

Eine theoretische Voraussage über Lebensdauern kann man auf Grund der Theorie von Bohr und Wheeler [18] gewinnen. Rechnungen mittels Niveaudichtebetrachtungen und der Methode von Hauser-Feshbach [20] werden verschiedentlich beschrieben [21,22]. Für die Reaktion $^{238}\text{U}(n,f)$ werden zur Zeit solche Abschätzungen der Lebensdauer (Reaktionszeit) in Kopenhagen [13,23] durchgeführt.

Eine halbempirische Berechnung der Lebensdauern lässt sich durch folgende Ueberlegungen gewinnen. Aus 2.1.5 (S. 5) folgt

$$2.1.11 \quad \frac{\sigma(n,\gamma)}{\sigma} = \frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma},$$

und umgeformt

$$2.1.12 \quad \Gamma = \Gamma_\gamma \cdot \frac{\sigma}{\sigma(n,\gamma)}.$$

Mit $\Gamma_\gamma = 0,030 \text{ eV}$ erhält man dann

$$2.1.13 \quad \tau = \hbar / \Gamma \approx 220 \cdot \frac{\sigma(n,\gamma)}{\sigma} \cdot 10^{-16} \text{ s.}$$

In Fig. 3 sind die Wirkungsquerschnitte von ^{238}U für Neutronen von 1 - 15 MeV zusammengestellt, wobei σ_c nach 2.1.2 (S. 5) berechnet wurde. Abschätzungen der Lebensdauer nach 2.1.13 (S. 9) sind in Fig. 15 dargestellt.

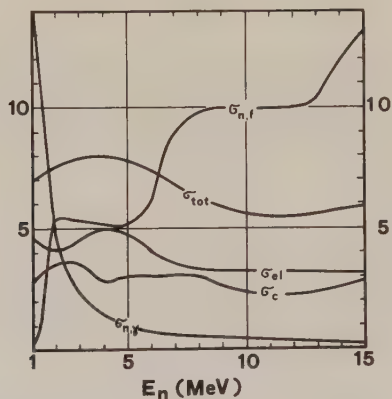


Fig. 3 : Wirkungsquerschnitte von ^{238}U im Bereich der Neutronen-Energien von 1 - 15 MeV (aus [29]).

Die Ordinate ist für die folgenden Querschnitte zu multiplizieren mit

$\sigma_{n,\gamma}$	10 mb
$\sigma_{n,f}$	0,1 b
$\sigma_{tot}, \sigma_{el}, \sigma_c$	1 b

2.2. Der Schatteneffekt (Blocking-Effekt)

Werden positiv geladene Partikel in einem Einkristall von einem Gitterplatz aus emittiert, so können sie sich praktisch nicht in Richtung niedrig indizierter Netzebenen oder Gitterachsen bewegen. Die Winkelverteilung solcher Partikel, die aus einem Einkristall austreten, zeigt ein regelmässiges Bild lokaler Minima (Schatten), entsprechend den Richtungen niedrig indizierter Netzebenen oder Gitterachsen. Der Effekt wurde an einer Vielzahl von Partikeln beobachtet [1-13] und wurde von J. Lindhard [24] in einer detaillierten Theorie beschrieben. Andere Autoren [4,5] geben verschiedene Arten von Computersimulationen und Monte-Carlo-Rechnungen an, mit denen die Parameter der Minima bestimmt werden können.

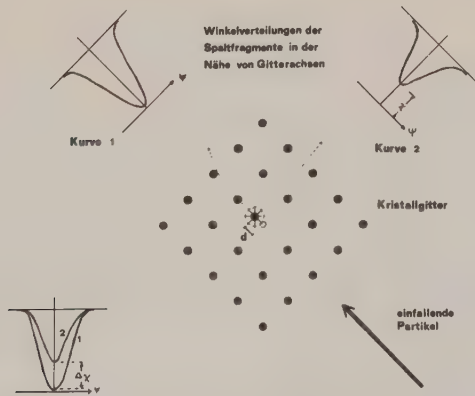


Fig. 4 : Lebensdauerbestimmung mit Hilfe des Blocking-Effektes

Normiert man solche Winkelverteilungen seitlich des Minimums zu 1, so kann der Schatten durch seine Breite $\psi_{1/2}$ in halber Tiefe und sein Minimum χ charakterisiert werden.

Wird nun eine Partikel von einem Kern emittiert, der sich von seinem Gitterplatz entfernt hat, so sind zwei Fälle zu unterscheiden (siehe Fig. 4). Hat sich der Kern in derselben Richtung verschoben, in der die Winkelverteilung beobachtet wird, so ergibt sich Kurve 1. Wird der Kern jedoch normal zur Beobachtungsrichtung verschoben, so können mehr Partikel in Richtung der Netzebene oder Gitterachse austreten und die Winkelverteilung ändert sich sowohl in der Breite $\psi_{1/2}$ wie in der Tiefe χ (Kurve 2). Die Differenzen beider Grössen können zur Bestimmung der mittleren Verschiebung d des emittierenden Kerns beigezogen werden. Entstand die Verschiebung durch den Rückstoss eines Zwischenkerns, der aus einem Gitterkern und einem einfallenden Teilchen gebildet wurde, so kann man aus der Geschwindigkeit $v_{\perp}$ des Rückstosskerns die mittlere Lebensdauer τ bestimmen:

2.2.1

$$d = v_{\perp} \cdot \tau$$

Diese Methode basiert also auf der gleichzeitigen Messung zweier Winkelverteilungen, einer mit maximalem Blocking-Effekt und einer durch den Rückstoss gestörten [11,12,13]. Die Winkelverteilung mit maximalem Blocking-Effekt kann auch mit Hilfe einer schnellen Reaktion (z.B. durch die direkte elastische Streuung schneller Protonen [6]) oder durch eine rückstossfreie Reaktion (z.B. Spaltung mit thermischen Neutronen [8]) ermittelt werden.

Lindhard [24] benutzt das abgeschirmte Thomas-Fermi-Potential, um die Bewegungen einer positiv geladenen Partikel im Gitter zu beschreiben. Dieses ist durch den "Thomas-Fermi-Abschirmradius" a_{TF} charakterisiert, bei welchem das Potential auf den e -ten Teil abgenommen hat.

Das Minimum der Winkelverteilung kommt dadurch zustande, dass diejenigen Partikel, die innerhalb einer Distanz r_c (r_c beträgt etwa das 3-5 fache von a_{TF}) parallel zu einer Atomreihe

emittiert werden, vom Potential dieser Reihe abgelenkt werden. Für kleine Auslenkungen des Kerns aus seinem Gitterplatz hat Lindhard die Beziehung

$$2.2.2 \quad \chi = \frac{\langle r^2 \rangle}{r_o^2}$$

zwischen der mittleren quadratischen Auslenkung $\langle r^2 \rangle$ und dem Minimum χ abgeleitet. r_o^2 ist gegeben durch die effektive Fläche der Atomreihe

$$2.2.3 \quad \pi \cdot r_o^2 = \frac{1}{N \cdot d} \quad .$$

Dabei bedeuten N die Atomdichte und d den Atomabstand in der Reihe.

Diese Abschätzung ergibt im Vergleich mit Experimenten zu kleine Werte für χ . Semiempirische Abschätzungen und Monte-Carlo-Rechnungen [25] führen zur Form

$$2.2.4 \quad \chi = C \cdot \frac{\langle r^2 \rangle}{r_o^2} \quad .$$

Für kleine Auslenkungen aus der Ruhelage erhält C den Wert $\sim 2-3$, für grössere Auslenkungen nimmt C bis auf 1 ab.

Die Gitteratome unterliegen einer thermischen Bewegung mit einer mittleren quadratischen Vibrationsamplitude $\langle \vartheta^2 \rangle$. Wir erhalten also einen Beitrag an die Schattentiefe

$$2.2.5 \quad \chi_{th} = C \cdot \frac{\langle \vartheta^2 \rangle}{r_o^2} \quad .$$

Wird der Kern mit der Geschwindigkeit $v_{\perp}$ senkrecht zur Atomreihe um die Distanz x verschoben, so erhält man für die Schattentiefe [9] :

$$2.2.6 \quad \chi_r = C \cdot \int_0^C \frac{x^2}{r_o^2} \cdot e^{-\frac{x}{v_{\perp} \cdot \tau}} \cdot \frac{1}{v_{\perp} \cdot \tau} \cdot dx + e^{-\frac{r_c}{v_{\perp} \cdot \tau}} \quad .$$

Bei dieser Beziehung ist exponentieller Zerfall mit der Lebensdauer τ vorausgesetzt. Der letzte Term in 2.2.6 stellt den Anteil der Partikel dar, die bei Distanzen $x > r_c$ emittiert werden.

Einen weiteren Anteil an die Schattentiefe liefern Partikel, die aus dem Kristall oder der Oberfläche zufällig in die

untersuchte Richtung gestreut werden. Dieser Anteil soll mit χ_z bezeichnet werden. Weitere Störungen können dazu führen, dass Partikel zur Schattenauffüllung beitragen, im vorliegenden Experiment die Vorspaltungsneutronen, deren Einfluss χ_{pref} später diskutiert wird. Unter Vernachlässigung von Mehrfacheffekten kann nun die totale Anzahl der im Minimum (der auf 1 normierten Winkelverteilung) registrierten Partikel additiv geschrieben werden :

$$2.2.7 \quad \chi = \chi_r + \chi_{\text{th}} + \chi_z + \chi_{\text{pref}} .$$

Werden jetzt also gleichzeitig zwei Winkelverteilungen aufgenommen, mit $v = 0$ und mit $v = v$, so kann die Differenz ermittelt werden :

$$\Delta \chi = \chi (v_{\perp}=v) - \chi (v_{\perp}=0) .$$

Da beide Winkelverteilungen unter den gleichen Versuchsbedingungen aufgenommen werden, sind die Störterme χ_{th} und χ_z für beide Fälle gleich. Auch der Term χ_{pref} wird, wie später gezeigt wird, in der Differenz wegfallen, also verbleibt mit

$$2.2.8 \quad \Delta \chi = \chi_r$$

ein Ausdruck ohne Störterme.

Für kleinere Auslenkungen

$$2.2.9 \quad v_{\perp} \cdot \tau \lesssim 0,4 \cdot r_0$$

kann 2.2.6 (S. 13) durch

$$2.2.10 \quad \chi_r \approx 2 \cdot C \cdot \pi \cdot N \cdot d \cdot (v_{\perp} \cdot \tau)^2$$

angenähert werden (vgl. [12]).

In diesen Fällen stellt die Wahl des Parameters C (vgl.

2.2.4, S.13) eine Quelle von Unsicherheiten dar. In vergleichbaren Arbeiten über Spaltfragmente [9,12,13] wurde C

zu $2,5^{+0,5}$ gewählt. Bei grossen $v_{\perp} \cdot \tau$ dagegen spielt praktisch nur der zweite Summand der Formel 2.2.6 eine Rolle, damit verunsichert hier die Wahl des Abschneideradius r_c das Resultat. In denselben Arbeiten wie oben wird $r_c = 0,4 \text{ \AA}$ angenommen.

Die Breite $\Psi_{1/2}$ des Schattens kann ebenfalls zur Analyse beigezogen werden. Versuche dieser Art scheinen jedoch noch nicht sehr zuverlässig [7]. Weitere Parameter der Winkelverteilungskurve, wie Steilheit der Flanken, Form und Grösse der in vielen Experimenten und Simulationen beobachteten Ueberschwingungen ("wings") könnten weitere Informationen über die Vorgänge im Kristall erbringen [26,6]. Auch das Integral über die Winkelverteilung wird von einigen Autoren [4,27] zur Bestimmung von Lebensdauern herbeigezogen.

2.3. Kristallstruktur von UO_2

Das Raumgitter des in der vorliegenden Arbeit verwendeten UO_2 -Kristalls ist kubisch-flächenzentriert, seine primitive Zelle weist folgende 4 Gitterpunkte auf:

$$\{0,0,0\} \quad , \quad \left\{0, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\right\} \quad , \quad \left\{\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0\right\} \quad , \quad \left\{\frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2}\right\} \quad .$$

Die Basis besteht aus einer O-U-O-Doppelhantel, die in Richtung der $\langle 111 \rangle$ -Achse (Würfeldiagonalen) orientiert ist.

Der Abstand b Sauerstoff-Uran beträgt $\frac{1}{4}$ der Länge der Würfeldiagonalen, also $\frac{a}{4} \cdot \sqrt{3}$ ($a = 5,45 \text{ \AA}$, $b = 2,36 \text{ \AA}$).

Die Struktur ist in Fig. 5 wiedergegeben, Fig. 6 zeigt einen Schnitt in einer (110)-Ebene, die durch je zwei Kanten des Würfels und zwei Flächendiagonalen begrenzt ist. Die für das später beschriebene Experiment wesentlichen Richtungen sind besonders hervorgehoben.

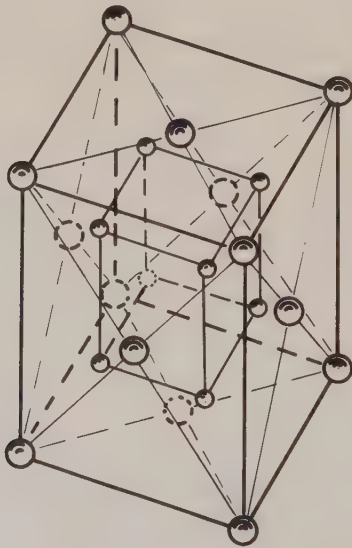


Fig. 5 :

Kristallstruktur von UO_2 . Auf dem äusseren Würfel sitzen die Uran-, auf dem inneren die Sauerstoff-Atome. Die Gitterkonstante beträgt $a = 5,45 \text{ \AA}$, die Dichte der Uran-Atome $N = 2,44 \cdot 10^{22} \text{ Atome/}$

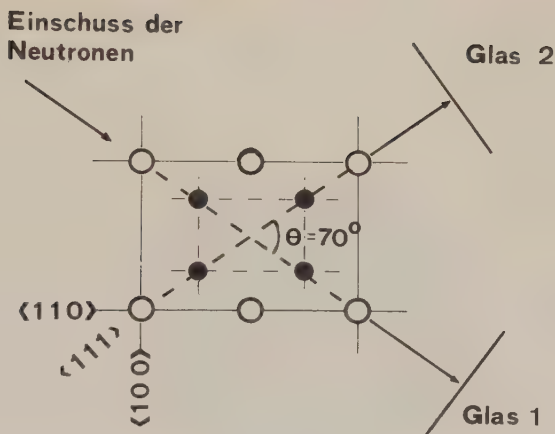


Fig. 6 : Schnitt durch eine Einheitszelle von UO_2 in einer (110) - Ebene. Offene Kreise : Uran-Atome, ausgefüllte Kreise : Sauerstoff-Atome. Der Abstand zweier Uranatome in einer $\langle 111 \rangle$ - Achse beträgt $d = 9,44$ Å.

Stellt man sich den Blockingeffekt als Schattenwurf vor, so ist jede Netzebene durch eine Schattenebene verlängert. Wird nun das Blockingbild mit einem ebenen Schirm aufgenommen, so bildet sich jede Netzebene als Schnittgerade ihres Schattens mit dem Schirm ab. Diese Abbildung ist äquivalent der gnomonischen Projektion der Kristallographie [37]. Mit Hilfe dieser Projektion, die aus der stereographischen abgeleitet werden kann, werden die typischen "Blocking-Sterne" gedeutet.

3. Experimentelle Methoden und Hilfsmittel

3.1. Die Aufnahme von Protonogrammen

Zur Orientierung der UO_2 -Einkristalle sowie für qualitative Prüfung der verwendeten Oberflächen wurden die Kristalle mit Protonen von 140-150 keV bestrahlt (Fig. 7). Der Strahl war auf 1 mm Durchmesser kollimiert. Das Schattenbild ("Protonogramm") wurde entweder mit einem Leuchtschirm beobachtet oder auf photographischem Material ("Gaevert Graphics") registriert. Für die direkte Beobachtung wurde 0,8-3 μA Protonen-Strom verwendet, für die Registrierung 40-1500 nA.min. Um Oberflächenschäden bei der Aufnahme von Protonogrammen gering zu halten, wurden möglichst kleine Ströme verwendet. Fig. 8 zeigt ein Beispiel eines UO_2 -Protonogramms.

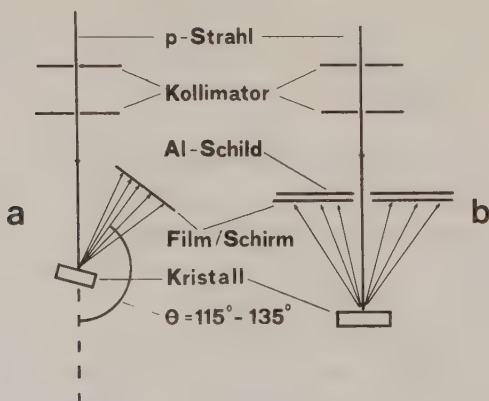


Fig. 7 : Anordnungen zur Aufnahme von Protonogrammen. Bei a) kann das Protonogramm auf einem Leuchtschirm beobachtet oder auf einem Film registriert werden. In b), einer Anordnung, die sich besonders zur Orientierung von Kristallen eignet, wird nur Film verwendet.

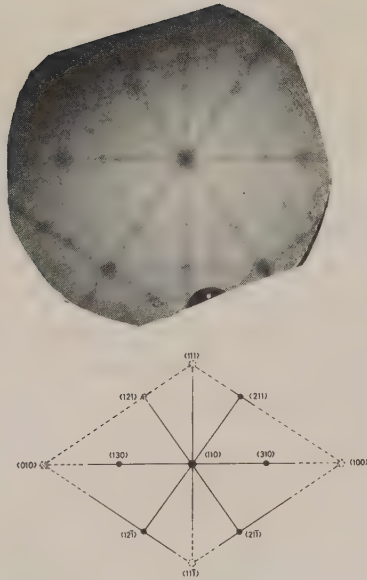


Fig. 8 : Beispiel eines UO_2 -Protonogramms, aufgenommen bei einer Protonenenergie von 140 keV in der Anordnung von Fig. 7a. Zur Deutung wurde die gnomonische Projektion eines kubischen Kristalls mit der $\langle 111 \rangle$ -Achse normal zur Projektionsebene aus der entsprechenden stereographischen ermittelt [38] .

3.2. Vorexperimente

UO_2 -Einkristalle* wurden zunächst mittels Proton-Blocking untersucht. Frische Spaltflächen ergaben gute Schattenstrukturen. Ein Kristall mit besonders guten Ergebnissen wurde ausgewählt. Er wies als Spaltfläche eine $\langle 111 \rangle$ -Ebene auf. Die Orientierung wurde durch Beobachtung des Blocking-Musters ermittelt. Um eine Schattenstruktur mit endlicher Winkelauflösung zu erhalten, ist es notwendig, entweder den Durchmesser des einfallenden Strahls (z.B. durch Kollimation) zu beschränken oder die Fläche, aus der die Reaktionsprodukte austreten, mittels einer Maske zu begrenzen.

Da Al-Masken auf der mehrheitlich unebenen Oberfläche des gespaltenen Kristalls schlecht anzubringen waren, wurde eine Maske aus Al-geladenem Lack (Nagellack) aufgetragen. Im ersten Vorexperiment wurde der solcherart vorbereitete Kristall in der Anordnung von Fig. 9 mit Neutronen von ca 14 MeV aus der Reaktion $T(d,n)^4\text{He}$ bestrahlt.

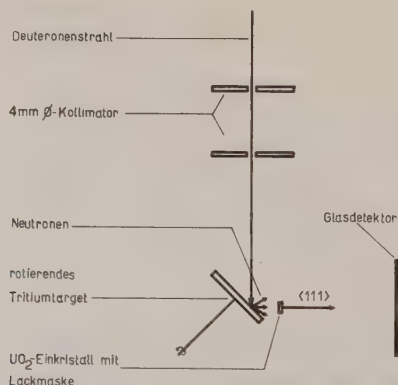


Fig. 9 :

Anordnung zur Aufnahme von Fragmentogrammen (Vorexperiment). 14-MeV-Neutronen wurden in der Reaktion $T(d,n)^4\text{He}$ mit Deuteronen von 150 keV erzeugt. Der Abstand T-Target - Kristall betrug etwa 12 mm, derjenige zwischen Kristall und Glasdetektor 50 mm.

* Wir danken Dr. J.L. Whitton, Chalk River Nuclear Laboratories Canada für die leihweise Ueberlassung einiger UO_2 -Kristalle.

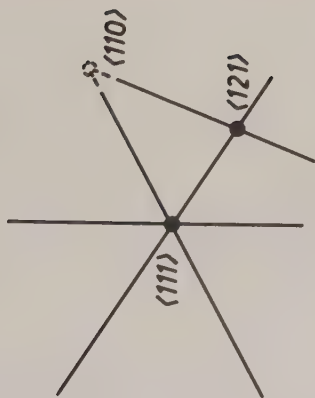


Fig. 10 : Fragmentogramm eines UO_2 -Einkristalles mit geometrischer Interpretation.
 $\langle 111 \rangle$ -Achse normal zur Aufnahmeebene.

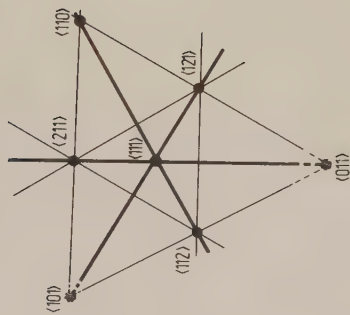


Fig. 11 : Protonogramm eines UO_2 -Einkristalles mit geometrischer Interpretation.
 $\langle 111 \rangle$ -Achse normal zur Aufnahmeebene.

Die aus dem Kristall austretenden Spaltfragmente wurden in einer Glasplatte gestoppt, die nach dem Ätzen bei seitlichem Lichteinfall photographiert* (Fig. 10) wurde. Die Schattenstruktur dieses "Fragmentogramms" stimmt mit derjenigen des "Protonogramms" (Fig. 11) überein.

Unter den gegebenen Versuchsbedingungen (akkumulierter Neutronenfluss $7,5 \cdot 10^{13} \text{ n in } 4\pi$) wurden bei diesem Experiment ca. $1 \cdot 10^3$ Spuren pro mm^2 registriert.

Mit demselben Kristall wurden am Swimming-Pool-Reaktor SAPHIR des EIR Würenlingen einige weitere Fragmentogramme aufgenommen. In allen Fällen wurde am Kanal 4 mit Kollimator direkt an der äusseren Abschirmung bestrahlt. Verwendet wurden akkumulierte Flüsse von $1-5 \cdot 10^{14} \text{ n/cm}^2$, wobei der thermische Anteil $2,7 \cdot 10^8 \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ und der epithermische $4,2 \cdot 10^8 \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ betrugen (Spurendichte $2 \cdot 10^3 / \text{mm}^2$ bei einem Abstand Kristall-Detektor von 50 mm).

Ebenfalls mit demselben Kristall wurde anschliessend ein Paar von Fragmentogrammen mit 14-MeV-Neutronen aufgenommen, um die Grössenordnung des Effekts $\Delta\chi$ abzuschätzen (vgl. Fig. 4). Die Resultate dieser Vorexperimente zeigten zunächst, dass eine Messung von Reaktionszeiten bei der schnellen Spaltung von ^{238}U mit der verwendeten Technik möglich ist. Deutlich wurde bei dieser Gelegenheit gezeigt, dass zur Messung nach Fig. 4 kristallographisch gleichartige Achsen verwendet werden müssen. Das Reaktorexperiment ergab zwar viele Hinweise auf die Geometrie des Kristalls und half, die Technik der Aufnahme und Auswertung auszufeilen, als Messung des "Referenz" - Ereignisses war es nicht tauglich, insbesondere wegen der ungünstigen Zusammensetzung des Neutronenstrahls.

* Für die Aufnahme sind wir Herrn J. Baier von der Fa. Schwitter AG Basel zu Dank verpflichtet.

3.3 Vorbereitung des Kristalls

Aus den Resultaten der Vorexperimente ergab sich, dass für die erwünschte Messung von Lebensdauern eine Kristallebene gefunden werden musste, aus der symmetrisch zur Normalen zwei $\langle 111 \rangle$ -Achsen austreten. Dieser Bedingung gehorcht die (110) -Ebene. Versuche, unsere Kristalle in der (110) -Ebene zu spalten [9], schlugen fehl. Darum wurde ein Kristall mit Hilfe der Laue-Rückstrahltechnik mit Röntgenstrahlen orientiert und normal zu einer $\langle 110 \rangle$ -Achse angeschliffen*. Zur Verfeinerung des Anschliffs wurden Schleifmittel mit zunehmend kleinerer Körnung verwendet, wobei zum Schluss mit $0,25\mu$ -Diamantpaste poliert wurde. Danach wurde der Kristall während ca. 30 Minuten in einer Lösung von ca. 50 ml $2n$ H_2SO_4 mit einigen Tropfen 30% H_2O_2 unter Zusatz von $(NH_4)Fe(SO_4)_2 \cdot 12H_2O$ geätzt.** Die Qualität der Oberfläche wurde durch Aufnahme eines Protonogramms überprüft, dessen Struktur keine allzu stark ins Gewicht fallenden Störungen bei der Aufnahme von Fragmentogrammen erwarten liess. Auf die ebene Oberfläche wurde eine Al-Maske, Dicke 40μ , Durchmesser der Oeffnung 1 mm, aufgeklebt.

3.4 Bestrahlung

In der Anordnung nach Fig. 12 wurde der Kristall mit Neutronen aus der Reaktion $T(d,n)^4He$ bestrahlt. Die Deuteronen wurden auf 150 keV beschleunigt, das Target war mit 2 mCi T/cm^2 belegt. Der Deuteronenstrahl war auf einen Durchmesser von 4 mm kollimiert. Aus der geometrischen Konstellation von Tritiumtarget und Kristall ergibt sich der Winkel zwischen einfallenden Deuteronen und Neutronen zu $70 \pm 15^\circ$, aus der Stellung des Targets zum Strahl und seiner Dicke eine mittlere Reaktionsenergie von ~ 100 keV. Daraus lässt sich die Neutronenenergie zu $14,3^{+0,1}_{-0,15}$ MeV errechnen.

* Für die Mithilfe bei diesen Schleifarbeiten danken wir Herrn T. Fischer vom Mineralogisch-Petrographischen Institut der Universität Basel.

** Für die Beratung in diesem Teil der Arbeit sind wir PD Dr. H.G. Seiler vom Anorganisch-Chemischen Institut der Universität Basel zu Dank verpflichtet.

Der Neutronenfluss wurde mit einem BF_3 - "Long-counter" [28] überwacht.

Die Bestrahlung dauerte 210 h und ergab einen akkumulierten Neutronenfluss von $1,7 \cdot 10^{14}$ n in 4π .

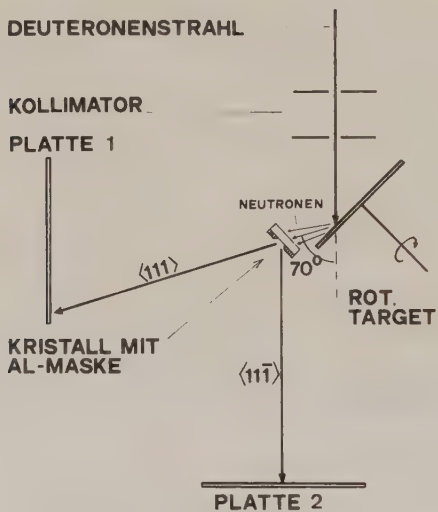


Fig. 12 : Experimentelle Anordnung für die Messung der $^{238}\text{U}(n,2nf)$ - Reaktionszeit. Die Deuteronenenergie betrug 150 keV, der Durchmesser des Kollimators 4 mm, die Distanzen T-Target - Kristall 12 mm, und Kristall - Glasdetektor 200 mm

3.5 Der Nachweis der Spaltfragmente in Glas

Schwere ionisierte Teilchen (wie z.B. Spaltfragmente) hinterlassen in isolierenden Festkörpern (Glas, Polycarbonate, Glimmer etc.) Spuren von Schädigungen, die mit geeigneten Aetzmitteln sichtbar gemacht werden können [32,33].

Glas hat sich in Vorexperimenten [30,31] als günstiger Detektor für Spaltfragmente erwiesen, da

- bei sorgfältiger Arbeit sowie Aetzung und mikroskopischer Kontrolle des Glases vor der Bestrahlung Störungen und Spuren gut unterscheidbar sind,
- beim weiter unten beschriebenen Rezept nur Fragmentspuren entwickelt werden und keine Spuren von andern Partikeln (d, α etc.),
- die Spuren auf so grossen Durchmesser geätzt werden können, dass die mikroskopische Auszählung bei geringer Vergrösserung stattfinden kann.

Diapositivdeckgläser werden 5-10 min in 10% HF bei Zimmer-temperatur geätzt, in H_2O gespült und bei $80-100^\circ$ getrocknet.

Gläser mit einer unbedeutenden ($\ll 1 \text{ mm}^{-2}$) Untergrund - Spurendichte werden bestrahlt und anschliessend wieder 10-15 min in 10% HF geätzt, gespült und getrocknet.

4. Messung und Auswertung

4.1. Bestimmung von Spurendichten

Die nach der vorher beschriebenen Methode behandelten und bestrahlten Glasplatten wurden zuerst unter streifendem Lichteinfall inspiziert und die durch den Blocking-Effekt entstandenen Schattenlinien markiert. Die Dichte der Fragment-spuren wurde anschliessend unter einem optischen Mikroskop^{*} ausgezählt, das über einen motorisch angetriebenen Kreuz-tisch verfügt.

Das Zentrum des Schattens der $\langle 111 \rangle$ -Achse wurde so ins Zentrum des Tisches gebracht, dass der Schatten der (110) -Ebene mit der x-Achse des Kreuztisches einen Winkel von $\sim 15^\circ$ bildete. Anschliessend wurden zwei Gruppen von je 4×24 Feldern in x- und y-Richtung ausgezählt. Mit einer dreidimensionalen graphischen Darstellung wurde in x- und y-Richtung je die Gruppe zu 24 Feldern ausgewählt, die das Zentrum des $\langle 111 \rangle$ -Schattens am besten traf. Anschliessend wurde die Glasplatte noch zweimal um je 30° um das Zentrum des $\langle 111 \rangle$ -Schattens gedreht und die Prozedur wiederholt (Fig. 13). Die somit erhaltenen 6 Gruppen zu 24 Feldern wurden summiert und normiert mit Hilfe von Auszählungen weit entfernt vom Zentrum und von andern Schatten.

Die einzelnen Zählfelder von 1×1 mm Grösse wurden durch die Mikroskopoptik mittels eines planen Spiegels auf ein Zählblatt projiziert, wo die Bilder der einzelnen Spuren mit einem Stift abgestrichen werden konnten. Ein Schalter im Stift schliesst den Stromkreis eines Zählwerks. Nach Beendigung des Zählens für ein Feld wird gleichzeitig der Kreuztisch um ein Feld weitergeführt und das Ergebnis gedruckt.

* Das Stichprobenmikroskop M 501 mit Steuergerät wurde uns von Herrn Dr. Schäfer von der Firma Wild freundlicherweise für diese Arbeit zur Verfügung gestellt. Eine Vorwahlenheit dazu wurde in unserm Institut entwickelt.

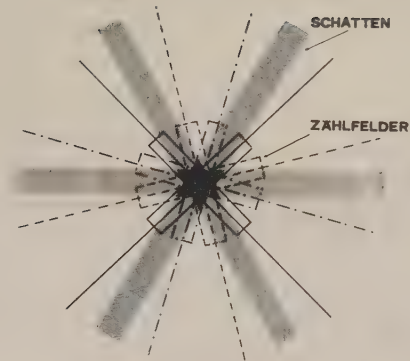


Fig. 13 : Anordnung der Zählfelder relativ zu den Schatten um die $\langle 111 \rangle$ -Achse.

4.2. Resultate der Auszählungen

Nach der Methode von Abschnitt 4.1. wurden die beiden bestrahlten und geätzten Glasplatten ausgezählt. Die Resultate sind in Fig. 14 und Tab. 3 wiedergegeben. Mit den Fehlerstrichen sind die statistischen Fehler der Einzelauszählung charakterisiert. Kurve 2 wurde mit einer Gauss-Funktion angepasst [6]; bei Kurve 1 war dies nicht möglich wegen der seltsamen Abschrägung zwischen 1° und 2.5° ausserhalb des

Minimums. Aehnliche Abschrägungen sind auch bei Melikov [12] und gelegentlich bei Gibson und Nielsen [9] zu sehen.

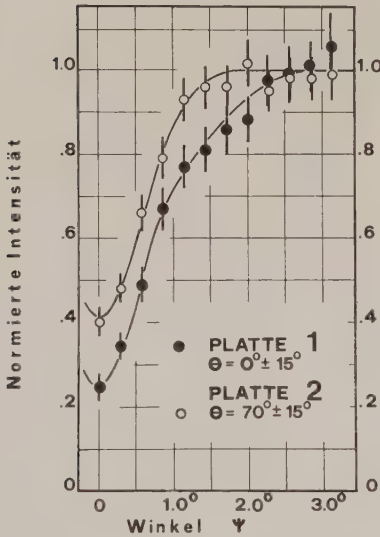


Fig. 14 :

Winkelverteilung der Spaltfragmente aus einem UO_2 - Einkristall, der 14,3 - MeV - Neutronen bestrahlt wurde. Die Winkelverteilung wurde über azimuthale Winkel integriert und mit Messungen bei grossen Emissionswinkeln normiert.

Tabelle 3 : Resultate der Auszählungen

	Platte 1	Platte 2	
θ	$0^\circ \pm 15^\circ$	$70^\circ \pm 15^\circ$	
$\chi_{\min}$	$0,25 \pm 0,05$	$0,41 \pm 0,05$	$\Delta\chi = 0,16 \pm 0,07$
$\psi_{1/2}$	$1,65^\circ$	$1,40^\circ$	

4.3. Bestimmung der Reaktionszeit von $^{238}\text{U}(n,2nf)$

Die Wahrscheinlichkeit p_i für die Spaltung in einem der drei möglichen Kanäle ist gleich

$$4.3.1 \quad p_i = \frac{\sigma_{f_i}}{\sigma_{f_{\text{tot}}}} \quad (i = 1, 2, 3).$$

Damit ist der Anteil der Fragmente, die zum Minimum der totalen (gemessenen) Winkelverteilung beitragen, gleich $p_i \cdot \chi_i$; man kann also ansetzen

$$4.3.2 \quad \chi_{\text{exp}} = p_1 \cdot \chi_1 + p_2 \cdot \chi_2 + p_3 \cdot \chi_3.$$

Dieser Ausdruck gilt sowohl für Beobachtung in Verlängerung der Einschussrichtung wie auch unter 70° dazu, also ebenfalls für die Differenzen :

$$4.3.3 \quad \Delta \chi_{\text{exp}} = p_1 \cdot \Delta \chi_1 + p_2 \cdot \Delta \chi_2 + p_3 \cdot \Delta \chi_3.$$

In Fig. 15 (S. 30) sind die Resultate der Messungen der Reaktionszeit für $^{238}\text{U}(n,f)$ aus Moskau [12] und Aarhus [13] zusammengestellt. In derselben Figur ist eine theoretische Abschätzung von J. Damgaard und A. S. Jensen aus Kopenhagen [13] eingetragen (strichpunktiert). Diese Abschätzung beruht auf Berechnung der Breiten Γ_n und Γ nach Hauser-Feshbach und auf Niveaudichterechnungen. Auch die semiempirischen Werte (s. S. 9, Formel 2.1.13) sind in dieser Figur (gestrichelt) dargestellt. Aus diesen Kurven kann die Reaktionszeit für $^{238}\text{U}(n,f)$ bei einer Neutronenenergie von 14,3 MeV abgelesen werden.

Für die Reaktion $^{238}\text{U}(n,nf)$ ist die Extraktion der Reaktionszeit aus derselben Kurve nur mit Vorbehalten zulässig, da für den (g,g)-Kern ^{238}U bzw. den (g,u)-Kern ^{239}U Paarungskorrekturen zu berücksichtigen sind.

Aus den derart gewonnenen Lebensdauern können nach Gleichung 2.2.10 (S. 14) die $\Delta \chi_i$ berechnet werden. Diese Daten sind in Tab. 4 zusammengefasst.

Tabelle 4 : Daten für die Berechnung von $\tau_3(^{238}\text{U}(n,2nf))$
bei $E_n = 14,3 \text{ MeV}$

Zwischen - kern	Reaktion	mittlere Anregungs - Energie	p_i	$\tau_{\text{ber}}(---)$	$\Delta\chi_i$
$^{239}\text{U}^*$	(n,f)	19,0 MeV	$0,41^{+0,02}_{-0,02}$	$8 \cdot 10^{-18} \text{ s}$	0,01
$^{238}\text{U}^*$	(n,nf)	12,6 MeV	$0,40^{+0,02}_{-0,02}$	$3,5 \cdot 10^{-17} \text{ s}$	0,037
$^{237}\text{U}^*$	(n,2nf)	5,4 MeV	0,194		

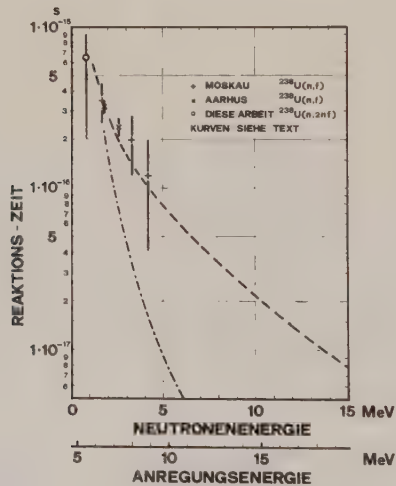


Fig. 15 : Vergleich von experimentellen mit berechneten
Reaktionszeiten für die neutroneninduzierte
Spaltung von ^{238}U

Mit diesen Daten erhalten wir

$$4.3.4 \quad \Delta\chi_3 = 0,75 \pm 0,36$$

Die Unsicherheit dieses Wertes geht auf den statistischen Fehler an $\Delta\chi_{\text{exp}}$ (vgl. Tab. 3, S. 28) zurück. Wegen der Bedingung 2.2.9 ist die Anwendung der vereinfachten Formel 2.2.11 (S. 14) nicht mehr zulässig, beträgt doch die mittlere Auslenkung $v_{\perp} \tau \sim 1,35 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$, gegenüber von $0,4 \cdot r_0 = 0,28 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$. Dagegen lässt sich Formel 2.2.6 (S. 13) anwenden, wobei der erste Summand gegenüber dem zweiten verschwindend klein wird. Wir setzen also

$$4.3.5 \quad \chi = e^{-\frac{r_c}{v_{\perp} \tau}}.$$

Setzt man ein: $r_c = 0,4 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$ und $v_{\perp} = (m_n/m_U) \cdot \sqrt{2 \cdot E_n/m_n} = 2,23 \cdot 10^7 \text{ cm.s}^{-1}$ und berücksichtigt, dass der Winkel zwischen den Beobachtungsrichtungen 70° beträgt und die einfallenden Neutronen einen Konus von ca. 15° Öffnungswinkel beschreiben durch Einführung einer korrigierten Geschwindigkeit $v_{\text{korr.}} = 2,04 \cdot 10^7 \text{ cm.s}^{-1}$, so erhält man

$$\tau_3 = (6,5 \pm 2,5 \text{ } -4,5) \cdot 10^{-16} \text{ s}.$$

Obwohl sich dieser Wert auf den Zwischenkern $^{237}\text{U}^*$ bezieht, ist er, bei der entsprechenden Anregungsenergie (die nach Emission zweier Neutronen beträchtlich verschmiert ist), zum Vergleich in Fig. 15 eingetragen. Die untere Fehler-schranke ist aus dem statistischen Fehler von $\Delta\chi_3$ (4.3.4) errechnet. Zur Ermittlung der oberen Fehlerschranke werden die Effekte der Prefission-Neutronen beigezogen (4.6).

4.4. Einfluss von Neutronen, die vor der Spaltung emittiert werden

Wie weiter oben erwähnt, konkurrenzieren sich bei einer Neutronenenergie von 14 MeV drei Spaltungsreaktionen (n,f), (n,nf), (n,2nf). Bei den zwei letzteren werden vor der Spaltung ein bzw. zwei Neutronen emittiert, deren Rückstossimpuls den Zwischenkern beeinflusst und damit zur Auffüllung des Blockingschattens beiträgt. Zur Abschätzung der Störung wurde von folgenden Annahmen über die "Prefission- oder Vorspaltungs-Neutronen" ausgegangen:

- Die Neutronenemission sei isotrop.
- Die Energieverteilung dieser Neutronen sei eine sog. Weisskopfverteilung [34,35]

$$N(E) = \text{const.} \cdot E \cdot e^{-E/T}.$$

Wegen der räumlichen Isotropie kann bei einer Mittelung über viele Prozesse die Störung analog derjenigen durch thermische Schwingungen behandelt werden. Es bleibt also ein mittlerer Rückstossradius ρ_{pref} analog zum Schwingungsradius ρ_{th} abzuschätzen. Die Emission von ein bzw. zwei Vorspaltungsneutronen verläuft unter folgenden Bedingungen:

- Ein Neutron von 14,3 MeV trifft auf den Kern, bildet einen Zwischenkern $^{239}\text{U}^*$ und beschleunigt ihn auf $v = 2,23 \cdot 10^7 \text{ cm/s}$.
- Nach t_1 ($< 1 \cdot 10^{-17} \text{ s}$, siehe Fig. 15) spaltet der Kern oder emittiert ein Neutron.
- Wurde ein Neutron emittiert, so wird der $^{238}\text{U}^*$ -Kern nach der Zeit t_2 ($\sim 3,5 \cdot 10^{-17} \text{ s}$, siehe Fig. 15) entweder spalten oder das zweite Prefission-Neutron aussenden.
- Erst nach einer Zeit t_3 ($\sim 6,5 \cdot 10^{-16} \text{ s}$) spaltet ein durch Neutronenemission gebildeter $^{237}\text{U}^*$ -Kern (oder emittiert ein drittes Neutron).

In einem Monte-Carlo-Programm wurden die Impulse zweier Neutronen gemäss der oben beschriebenen Annahme gewählt. Die Kerntemperaturen für die Neutronenspektren wurden zu $T_1 = 830 \text{ keV}$ bzw. $T_2 = 500 \text{ keV}$ [15] gesetzt. Es wurden 30'000 Ereignisse gemittelt. Für die in 4.3 bestimmte Reaktionszeit von $t_3 = 6,5 \cdot 10^{-16} \text{ s}$ wurde die

Wurzel der mittleren quadratischen Störamplitude $\sqrt{\langle \rho_{\text{pref}}^2 \rangle}$ zu $\rho_{\text{pref}} = 4,2 \cdot 10^{-9} \text{ cm}$ errechnet. Für die thermische Störamplitude $\sqrt{\langle \rho_{\text{th}}^2 \rangle}$ bei Zimmertemperatur kann der Literatur [36] der Wert $\rho_{\text{th}} = 0,7 \cdot 10^{-9} \text{ cm}$ entnommen werden. Der Anteil der ins Minimum der Winkelverteilung der (n,2nf)-Spaltung gestreuten Fragmente, die auf Auslenkung wegen der Prefission-Neutronen zurückzuführen ist, beträgt

$$4.4.1 \quad \chi_{\text{pref}} = c \cdot \frac{\langle \rho_{\text{pref}}^2 \rangle}{r_o^2} = 0,32$$

(Formel 2.2.4, S. 13)

Da die Prefission-Neutronen isotrop emittiert werden, tritt diese Auffüllung bei beiden Winkelverteilungen (0° bzw. 70°) auf, spielt also bei der Differenz $\Delta\chi_3$ keine Rolle.

4.5 Diskussion weiterer Terme von

Bei der Bestrahlung wurde der Temperatur des Kristalls keine besondere Beachtung geschenkt, es liegen jedoch Indizien vor, dass sie sich nicht allzuweit von der Labortemperatur entfernt haben kann. Nimmt man für die mittlere thermische Vibrationsamplitude $p_{th} = 0,07 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$ [36], so erhält man

$$4.5.1 \quad \chi_{th} = c \cdot \frac{\langle p^2 \rangle}{r_o^2} \approx 0,006$$

Zufällige Streuung und Oberflächeneffekte sind schwierig in Rechnung zu stellen, Lindhard [24, Seite 50] schätzt sie auf etwa 6%. Damit könnte grob gesetzt werden :

$$4.5.2 \quad \chi_{th} + \chi_z \approx 0,07$$

Nicht berücksichtigt sind dabei die Sauerstoffatome, die in der $\langle 111 \rangle$ - Richtung zwischen den Uranatomen liegen und ihrerseits zu "zufälligen" Streuungen beitragen.

In Tabelle 5 sind die Schattentiefen verschiedener Messungen an UO_2 -Einkristallen für das Referenz-Ereignis, beobachtet in einer $\langle 111 \rangle$ - Richtung, zusammengestellt.

Tabelle 5 : Schattentiefen für Spaltfragment-Messungen an UO_2 -Einkristallen in $\langle 111 \rangle$ - Richtung, Referenz-Ereignis

Autor	Ref	Reaktion	Referenz-Ereignis	min
Gibson	9	$^{238}\text{U}(p, f)$	$E_p = 9 \text{ MeV} / 12 \text{ MeV}$	0,16
Brown	8	$^{238}\text{U}(p, f)$	$^{238}\text{U}(n_{th}, f)$	0,15
Melikov	12	$^{238}\text{U}(n, f)$	$\vartheta = 0^\circ$	0,42 ($E_n = 1,7 \text{ MeV}$) 0,35 ($E_n = 3,3 \text{ MeV}$)
	12	$^{238}\text{U}(\alpha, f)$		0,38
Andersen	13	$^{238}\text{U}(n, f)$	$\vartheta = 0^\circ$	0,13 gekühlt 0,40 ungekühlt
unsere Arbeit		$^{238}\text{U}(n, f)$	$\vartheta = 0^\circ$	0,25

4.6 Abschätzung der oberen Fehlerschranke

Die in 4.3.4 (S. 31) angegebenen statistischen Fehler erlauben die Abschätzung der oberen Fehlerschranke nicht, da ein $\Delta\chi \sim 1$ auf eine beliebig grosse Lebensdauer des beobachteten Zwischenkernsystems schliessen lässt. Da die Effekte der Prefission-Neutronen ebenfalls von der Reaktions-Zeit abhängen, lässt sich mit ihrer Hilfe eine Abschätzung für die obere Fehlerschranke anstellen.

Interpretieren wir die in der 0^0 -Richtung gemessene Schattentiefe $\chi_{\text{exp}}^0 = 0,25$ im Vergleich mit den übrigen Messungen (Tab. 5), die im Mittel etwa 0,15 zeigen, als nur durch Prefission-Neutronen-Effekte gestört, so betrüge deren maximaler Anteil am gemessenen Minimum

$$4.6.1 \quad (\chi_{\text{pref}})_{\text{exp}} = 0,10 \pm 0,03$$

Mit Formel 4.3.3 (S. 29) umgerechnet

$$4.6.2 \quad (\chi_{\text{pref}})_3 = \frac{(\chi_{\text{pref}})_{\text{exp}}}{p_3} = 0,52 \pm 0,15$$

und in Formel 4.4.1 eingesetzt, erhält man

$$4.6.3 \quad (\sqrt{\langle \rho_{\text{pref}}^2 \rangle})_{\text{max}} = (5,36 \pm 0,73) \cdot 10^{-9} \text{ cm}.$$

Verglichen mit dem in Abschnitt 4.4 errechneten Wert ergibt sich somit eine maximale Reaktions-Zeit von

$$4.6.4 \quad (\tau_3)_{\text{max}} \approx 9,0 \cdot 10^{-16} \text{ s}$$

als obere Schranke für den gemessenen Wert.

5. Diskussion

Die Analyse der experimentellen Daten zur Bestimmung der $^{238}\text{U}(n,2nf)$ -Reaktionszeit (siehe 4.3) beinhaltet folgende Schwierigkeiten.

Einmal müssen die partiellen Spaltquerschnitte bei höheren Energien durch Extrapolationen gewonnen werden. Wie sich zeigt, sind jedoch Unsicherheiten der Extrapolation ohne grossen Einfluss auf das Endresultat. In unserer Aufteilungsformel (4.3.3) werden die Reaktionszeiten der beiden ersten (schnellen) Kanäle eingesetzt. Sicherheitshalber wurden grössere Zeiten verwendet als sie die theoretischen Abschätzungen voraussagen (Fig. 15). Sollte sowohl die $^{238}\text{U}(n,f)$ - als auch die $^{238}\text{U}(n,nf)$ -Reaktionszeit für Anregungsenergien von 19,0 resp. 12,6 MeV kleiner sein als $1 \cdot 10^{-17}\text{s}$, so wäre die von uns ermittelte Reaktionszeit höchstens um ca. 30% grösser.

Bedeutendere Unsicherheiten bringt uns die Anwendung der Lindhardtheorie. Diese, zusammen mit den bisher durchgeführten Simulationen, bezieht sich auf "kleine" Auslenkungen der Quelle aus dem Gitterplatz. Aus unsern Messungen muss auf Auslenkungen wegen Rückstoss von ca. $1 \cdot 10^{-8}\text{cm}$, ferner auf Störauslenkungen wegen der Prefissionneutronen von ca. $0,3 \cdot 10^{-8}\text{cm}$ gerechnet werden. Diese Grössen können kaum noch als "kleine" Auslenkungen bezeichnet werden. Uns sind keine Experimente oder Theorien bekannt, in denen mit derart grossen Auslenkungen gearbeitet wird. Die Wahl des Abschneideradius $r_c (= 0,4 \cdot 10^{-8}\text{cm})$ ist weniger kritisch als diejenige der Hilfskonstanten $C (= 2,5 \pm 0,5)$, die "bei grossen Auslenkungen" auf 1 abnehmen soll [25].

Wie schon in 2.1 gesagt, existieren weder partielle Spaltquerschnitte für die Reaktion $^{238}\text{U}(n,2nf)$ noch Messungen der Reaktionszeit. Da jedoch Reaktionszeit und Niveaudichte eng verknüpft sind, und letztere sich beim Uebergang von ^{237}U auf ^{239}U (bei geeigneter Anpassung der Anregungsenergie) praktisch nicht ändert, kann der Vergleich mit den $^{238}\text{U}(n,f)$ -Reaktionszeiten angestellt werden. Dieser Vergleich ist in Fig. 15

dargestellt und zeigt eine recht gute Uebereinstimmung unserer $^{238}\text{U}(n,2nf)$ -Reaktionszeit mit den experimentell bestimmten Zeiten der $^{238}\text{U}(n,f)$ -Reaktion.

Meinem Lehrer, Herrn Prof. Dr. R. Wagner bin ich für die Anleitungen und vielen fruchtbaren Diskussionen zu Dank verpflichtet. Für ständige Hilfe bei Experiment und Auswertung danke ich Herrn R. Abegg recht herzlich. Frau E. Zupranska (auf Urlaub von der Technischen Hochschule Warschau, Polen), die Herren H. Sobottka und J. Schacher haben sich einige Zeit an der Arbeit beteiligt. Die Herren H. Weyeneth von der mechanischen und F. Abt von der elektronischen Werkstatt haben durch mancherlei Kunststücke und viele Ratschläge diese Arbeit erleichtert. Besonders möchte ich meiner Mutter, Frau Dr. med. Ilse Maria Noelpf-Eschenhagen für die grammatikalische Korrektur und meiner Frau Elisabeth für das Schreiben des Manuskripts danken. Der Schweizerische Nationalfonds hat diese Arbeit finanziell unterstützt.

Literaturverzeichnis

- 1 B. Domei und K. Björkqvist, Phys. Lett. 14,127 (1965)
- 2 D.S. Gemmell und R.E. Holland, Phys. Rev. Lett. 14,945 (1965)
- 3 A.F. Tulinov, Dokl. Akad. Nauk, 162,546 (1965); Doklady 10,463 (1965)
- 4 M. Maruyama, K. Tsukada, K. Ozawa, F. Fujimoto, K. Komaki, M. Mannami und T. Sakurai, Nucl. Phys. A145,581 (1970)
- 5 G.J. Clark, J.M. Poate, E. Fuchini, C. Maroni, I.G. Massa, A. Uguzzoni und E. Verondini, Nucl. Phys. A173,73 (1971)
- 6 W.M. Gibson, Y. Hashimoto, R.J. Keddy, M. Maruyama und G.M. Temmer, Phys. Rev. Lett. 29,74 (1972)
- 7 R.P. Sharma, J.U. Andersen und K.O. Nielsen private Mitteilung (1972), erscheint demnächst
- 8 F. Brown, O.H. Marsden und R.D. Werner, Phys. Rev. Lett. 20,1449 (1968)
- 9 W.M. Gibson und K.O. Nielson, Phys. Rev. Lett. 24,114 (1970); Proc. Int. Symp. on the Physics and Chemistry of Fission, IAEA Wien (1969), Seite 861 ff
- 10 S.A. Karameyan, Yu.Ts. Oganessian und F. Normuratov, P7-5512, Joint Institute for Nuclear Research, Dubna (1972); Sov. Jour. Nucl. Phys. 14,279 (1972)
- 11 Yu.V. Melikov, Yu.D. Otstavnov und A.F. Tulinov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 56,1803 (1969); Sov. Phys. JETP 29,968 (1969)
- 12 Yu.V. Melikov, Yu.D. Otstavnov, A.F. Tulinov und N.G. Chetchenin, Nucl. Phys. A180,241 (1972)
- 13 J.U. Andersen, K.O. Nielsen, J. Skak-Nielsen, R. Hellborg R.P. Sharma und E. Szentpétery private Mitteilung 1972, erscheint demnächst
- 14 C. Poppelbaum, P. Huber, Z. Lewandowski, R. Plattner und R. Wagner, Helv. phys. Acta 35,753 (1962)
- 15 P. Boschung, St. Gagneux, B. Hoop jr., P. Huber, Z. Lewandowski und R. Wagner, Helv. phys. Acta 42,225 (1969)
- 16 J.R. Huizenga, Physica 21,410 (1955)
- 17 J.R. Huizenga und R. Vandenbosch, Nuclear Reactions, Band II Amsterdam 1962, Seite 42 ff.
- 18 N. Bohr und J.A. Wheeler, Phys. Rev. 56,426 (1939)
- 19 J.R. Nix und E. Sassi, Nucl. Phys. 81,61 (1966)
- 20 W. Hauser und H. Feshbach, Phys. Rev. 87,366 (1957)

- 21 E. Lynn, Nuclear Structure with Neutrons, Oxford 1969
- 22 R.W. Lamphere und R. Vandenbosch, Physics and Chemistry of Fission (IAEA, Salzburg 1966)
- 23 S. Björnholm, persönliche Mitteilung 1972
- 24 J. Lindhard, Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-Fys. Medd. 34, No.14 (1965)
- 25 J.H. Barret, Bull. Am. Phys. Soc. 14,372 (1969)
- 26 G.M. Temmer, persönliche Mitteilung 1972
- 27 K. Komaki und F. Fujimoto, Phys. Lett. 29B,414 (1969)
- 28 J.B. Marion und J.L. Fowler, Fast Neutron Physics Band I New York 1960, Seite 361 ff
A.O. Hansen und J.L. McKibben, Phys. Rev. 72,673 (1947)
- 29 Neutron Cross Sections, BNL 325 (Februar 1965)
- 30 A. Tsekouras, Diplomarbeit Basel 1970
- 31 W. Schröder, Diplomarbeit Basel 1970
- 32 R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker und E.L. Hubbard, Phys. Rev. 133A,1443 (1964)
- 33 R.L. Fleischer, P.B. Price und R.M. Walker
Ann. Rev. Nucl. Science 15,1 (1965)
- 34 V.F. Weisskopf, Phys. Rev. 52,295 (1937)
- 35 J.M. Blatt und V.F. Weisskopf, Theoretical Nuclear Physics, New York 1952, Seite 365
- 36 J.U. Andersen und E. Uggerhøj, Can. Jour. Phys. 46,517 (1968)
- 37 W.F. de Jong, Kompendium der Kristallkunde, Wien 1959
- 38 E. A. Wood, Crystal Orientation Manual, New York & London 1969

Lebenslauf

Ich, Ulrich Bernhard Noelpp, Bürger von Basel, wurde am 1.11.1939 als erster Sohn des Arztes Dr. med. Bernhard Ludwig Friedrich August Noelpp und der Aerztin Dr. med. Ilse Maria Noelpp-Eschenhagen in Lübeck, Deutschland, geboren. Meine Eltern sind derzeit in Basel wohnhaft. Nach Primarschulbesuch in Lübeck und München besuchte ich zuerst das Wittelsbacher Gymnasium in München und dann das Gymnasium in Kempten im Allgäu. Ab Herbst 1953 wohnte ich in Basel und ging ins Humanistische Gymnasium, wo ich im Frühjahr 1959 das Maturitätszeugnis Typ A erhielt. Vom Herbst 1959 bis Frühjahr 1961 war ich an der ETH Zürich immatrikuliert und nach einem Unterbruch ab Frühjahr 1963 an der philosophisch-naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Basel.

Vorlesungen und Praktika besuchte ich bei den Herren Professoren und Dozenten Saxer, Stiefel, Eckert, Scherrer, Blaser, Huber, Habicht, Tamm, Erlenmeyer, Fallab, Conzelmann, Grob, Miescher, Alder, Striebel, Wagner, Baldinger, Diehl, Baumgartner, Czaja, Rudin, Niggli.

Das Vordiplom in Experimentalphysik bestand ich am 5.11.64 in Basel, das Diplom am 5.5.67 eben dort.

